

(12) NACH DEM VERTRAG ÜBER DIE INTERNATIONALE ZUSAMMENARBEIT AUF DEM GEBIET DES
PATENTWESENS (PCT) VERÖFFENTLICHTE INTERNATIONALE ANMELDUNG

(19) Weltorganisation für geistiges Eigentum
Internationales Büro



(43) Internationales Veröffentlichungsdatum
19. September 2002 (19.09.2002)

PCT

(10) Internationale Veröffentlichungsnummer
WO 02/072252 A1

(51) Internationale Patentklassifikation⁷: **B01J 8/00, F28F 27/02, H01M 8/24, C01B 3/00, B01J 19/00**

(21) Internationales Aktenzeichen: PCT/DE02/00617

(22) Internationales Anmeldedatum:
20. Februar 2002 (20.02.2002)

(25) Einreichungssprache: Deutsch

(26) Veröffentlichungssprache: Deutsch

(30) Angaben zur Priorität:
101 12 074.5 12. März 2001 (12.03.2001) DE

(71) Anmelder (für alle Bestimmungsstaaten mit Ausnahme von US): **FORSCHUNGSZENTRUM JÜLICH GMBH** [DE/DE]; Wilhelm-Johnen-Strasse, 52425 Jülich (DE).

(72) Erfinder; und

(75) Erfinder/Anmelder (nur für US): **BEWER, Thomas** [DE/DE]; Peliserkerstrasse 49, 52068 Aachen (DE). **BECKMANN, Thomas** [DE/DE]; Rumbachtal 10, 45470 Mülheim/Ruhr (DE). **DOHLE, Hendrik** [DE/DE]; Schroiffstrasse 32, 52224 Stolberg-Mausbach (DE). **MERGEL, Jürgen** [DE/DE]; Jan-von-Werth-Strasse 96, 52428 Jülich (DE). **STOLTEN, Detlef** [DE/DE]; Sperberweg 2, 52076 Aachen (DE). **STALLING, Jan** [DE/DE]; Am Hamjebusch 22, 26655 Westerstede (DE). **PETERS, Ralf** [DE/DE]; Heckenweg 14, 52080 Aachen (DE).

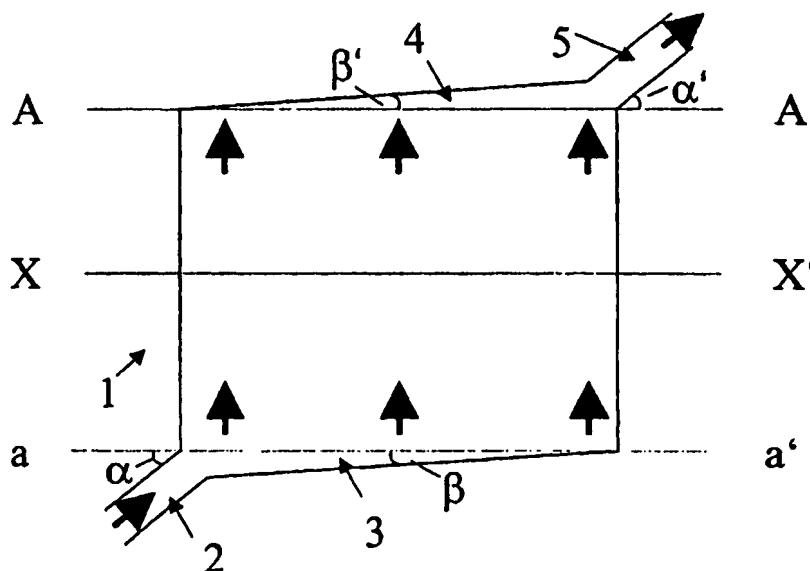
(74) Gemeinsamer Vertreter: **FORSCHUNGSZENTRUM JÜLICH GMBH**; Recht und Patente - Patente, 52425 Jülich (DE).

(81) Bestimmungsstaaten (national): AU, CA, JP, US.

[Fortsetzung auf der nächsten Seite]

(54) Title: REACTOR HAVING A UNIFORM DISTRIBUTION OF OPERATING MATERIALS

(54) Bezeichnung: REAKTOR MIT GLEICHMÄSSIGER VERTEILUNG VON BETRIEBSMITTELN



(57) Abstract: The invention relates to a reactor, particularly a fuel cell. The reactor or the fuel cell comprises a feed channel for an operating material, whose cross-section decreases over the length thereof, and comprises an inlet of a supply channel. The supply channel provides the feed channel with an operating material via the inlet. The operating material enters the reactor or the fuel cell from the feed channel. The operating material is uniformly distributed inside the reactor or inside the fuel cell by virtue of the fact that the inlet and the admission side of the reactor or of the fuel cell form an angle α ranging from 20 to 70 degrees, in particular, 45 degrees.

[Fortsetzung auf der nächsten Seite]

WO 02/072252 A1



(84) **Bestimmungsstaaten** (*regional*): europäisches Patent (AT, BE, CH, CY, DE, DK, ES, FI, FR, GB, GR, IE, IT, LU, MC, NL, PT, SE, TR).

Zur Erklärung der Zweibuchstaben-Codes und der anderen Abkürzungen wird auf die Erklärungen ("Guidance Notes on Codes and Abbreviations") am Anfang jeder regulären Ausgabe der PCT-Gazette verwiesen.

Veröffentlicht:

- mit internationalem Recherchenbericht
- vor Ablauf der für Änderungen der Ansprüche geltenden Frist: Veröffentlichung wird wiederholt, falls Änderungen eintreffen

(57) **Zusammenfassung:** Die Erfindung bezieht sich auf einen Reaktor, insbesondere eine Brennstoffzelle. Dieser bzw. diese weist einen Zuführungskanal für ein Betriebsmittel, dessen Querschnitt über seine Länge abnimmt, und einen Zulauf eines Versorgungskanals auf. Der Versorgungskanal versorgt den Zuführungskanal über den Zulauf mit einem Betriebsmittel. Aus dem Zuführungskanal tritt das Betriebsmittel in den Reaktor bzw. die Brennstoffzelle ein. Die Verteilung des Betriebsmittels in dem Reaktor bzw. in der Brennstoffzelle erfolgt gleichmässig, da der Zulauf und die Eintrittsseite des Reaktors bzw. der Brennstoffzelle einen Winkel α von 20 bis 70 Grad, insbesondere 45 Grad, einschliessen.

B e s c h r e i b u n g

Reaktor mit gleichmäßiger Verteilung
von Betriebsmitteln

Die Erfindung betrifft die Zuführung von Betriebsmitteln in chemische oder elektrochemische Reaktoren, insbesondere Brennstoffzellen und den Reaktoren und Wärmetauschern der Brenngaserzeugung für die mobile Anwendung der Brennstoffzelle.

Chemische und elektrochemische Reaktoren dienen dazu, Reaktionsedukte einer Reaktionszone zuzuführen, chemische oder elektrochemische Reaktionen durchzuführen und Reaktionsprodukte aus der Reaktionszone abzuleiten. Energie kann dabei zugeführt oder auch freigesetzt werden. Als Energiearten können sowohl thermische Energie als auch elektrische Energie zum Einsatz kommen.

Im Falle einer Brennstoffzelle wird elektrische Energie direkt aus einem Brennstoff und einem Oxidationsmittel gewonnen. Sie weist eine Kathode, einen Elektrolyten sowie eine Anode auf. Der Kathode wird ein Oxidationsmittel, z. B. Luft und der Anode wird ein Brennstoff, z. B. Wasserstoff zugeführt.

Verschiedene Brennstoffzellentypen sind bekannt, so beispielsweise die SOFC-Brennstoffzelle aus der Druckschrift DE 44 30 958 C1 sowie die PEM-Brennstoffzelle aus der Druckschrift DE 195 31 852 C1.

Die SOFC-Brennstoffzelle wird auch Hochtemperaturbrennstoffzelle genannt, da ihre Betriebstemperatur bis zu 1000 °C beträgt. An der Kathode einer Hochtemperaturbrennstoffzelle bilden sich in Anwesenheit des Oxidationsmittels Sauerstoffionen. Die Sauerstoffionen passieren den Elektrolyten und rekombinieren auf der Anodenseite mit dem vom Brennstoff stammenden Wasserstoff zu Wasser. Mit der Rekombination werden Elektronen freigesetzt und so elektrische Energie erzeugt.

Die Betriebstemperatur einer PEM-Brennstoffzelle liegt bei ca. 80 °C. An der Anode einer PEM-Brennstoffzelle bilden sich in Anwesenheit des Brennstoffs mittels eines Katalysators Protonen. Die Protonen passieren den Elektrolyten und verbinden sich auf der Kathodenseite mit dem vom Oxidationsmittel stammenden Sauerstoff zu Wasser. Elektronen werden dabei freigesetzt und elektrische Energie erzeugt.

Als Brennstoff kann unter anderem auch Methan oder Methanol vorgesehen werden. Die genannten Brennstoffe werden dann durch Reformierung in Wasserstoff bzw. wasserstoffreiches Gas umgewandelt.

Mehrere Brennstoffzellen werden in der Regel zur Erzielung großer elektrischer Leistungen durch verbindende Elemente elektrisch und mechanisch miteinander verbunden. Ein Beispiel für ein solches verbindendes Element stellt die aus DE 44 10 711 C1 bekannte bipolare Platte dar. Mittels bipolarer Platten entstehen übereinander

gestapelte, elektrisch in Serie geschaltete Brennstoffzellen. Diese Anordnung wird Brennstoffzellenstapel genannt.

- 5 Aus der Druckschrift DE 197 34 729 C 1 ist bekannt, ein Betriebsmittel über Kanäle schräg an schlitzförmige Aussparungen eines Zuführungsbauteils heranzuführen und es anschließend über schlitzförmige Gasverteilerstrukturen einer modular aufgebauten bipolaren Platte in
10 einen Elektrodenraum einzuleiten.

- Aus Ogiwara, et al. (Ogiwara, T., Yakabe, H., Hishinuma, M., Yasuda I., 2000. Assessment of mechanical reliability of planar SOFCs in view of selection of
15 materials and operating conditions. In: McEvoy, A.J. (ed.) 4th European Solid Oxide Fuel Cell Forum, 10-14 July 2000, Luzern, Schweiz) ist bekannt, daß einem sich verengenden Zuführungskanal das Betriebsmittel über einen senkrecht auf den Zuführungskanal stoßenden Versorgungskanal zugeleitet wird. Der Querschnitt des Zuführungskanals nimmt dabei über den Strömungsweg des Betriebsmittels entlang der Eintrittsseite einer Brennstoffzelle ab. Der Zuführungskanal grenzt an die Eintrittsseite der Brennstoffzelle und führt das
20 Betriebsmittel der Elektrode zu.

- Nachteilig tritt im Stand der Technik regelmäßig eine Ungleichverteilung des Betriebsmittels innerhalb der Brennstoffzellen auf. Dadurch entstehen Einbußen im
30 Wirkungsgrad.

Die Ungleichverteilung von Betriebsmitteln ist darüber hinaus für eine Vielzahl weiterer Reaktoren, insbesondere solchen mit Strukturen im Submikrometerbereich nachteilig. Genannt seien beispielhaft die Wärmetauscher und Reaktoren der autothermen Reformierung (ATR).
5 Dabei ist aufgrund der geringen Toleranz der Polymer-Elektrolyt-Brennstoffzelle (PEFC) gegenüber Kohlenmonoxid eine sich der Reformierung anschließende weitere Abreicherung dieser Komponente aus dem entstandenen
10 Synthesegas erforderlich. Diese CO-Konvertierung zum für die Brennstoffzelle ungefährlichen Kohlendioxid erfolgt in der Regel in einem ersten Schritt mit Wasser durch die sogenannte Shift-Reaktion und, da diese aufgrund einer thermodynamischen Gleichgewichtslimitierung
15 den zur Zeit geforderten CO-Grenzwert von 10 ppm nicht erreichen kann, in einem zweiten Schritt durch die Oxidation mit Sauerstoff/Luft in der sogenannten präferentiellen Oxidation. Beide Reaktionen werden katalytisch durchgeführt und verlaufen exotherm. Bei der Shift-
20 Reaktion führt die aus der Exothermie der Reaktion erfolgende Erwärmung des Gases zu einer ungünstigen Verschiebung des thermodynamischen Gleichgewichtes auf die Seite der Edukte. Bei der präferentiellen Oxidation führt eine Erwärmung des Gases zu einer verstärkten parallel zur CO-Oxidation ablaufenden H₂-Oxidation, da
25 die heutzutage verwendeten Oxidationskatalysatoren, in der Regel Platin-basiert, für beide Reaktionen katalytisch aktiv sind. Bei beiden Reaktionen ist somit eine gezielte Temperaturabführung wünschenswert, die vorteilhaft in Mikrokanälen durchgeführt werden kann, da
30 diese gute Wärmeübertragungseigenschaften aufweisen.

Die Realisierung einer gleichmäßigen Durchströmung beim Übergang von den Zuleitungen im Makromaßstab auf eine Vielzahl parallel geschalteter Mikrokanäle stellt dabei ein bekanntes Problem dar (Walter, S., Frischmann, G., Broucek, R., Bergfeld, M., Liauw, M. (1999). Fluiddynamische Aspekte in Mikrostruktureaktoren, Chemie Ingenieur Technik, 71, 447-455), so daß geeignete Reaktoren entwickelt werden müssen.

10 Aufgabe der Erfindung ist es daher, einen Reaktor bereit zu stellen, in dem eine gleichmäßige Verteilung eines Betriebsmittels gewährleistet wird.

Aufgabe ist es weiterhin, ein Verfahren zum Betreiben eines Reaktors bereit zu stellen, mit dem eine gleichmäßige Verteilung eines Betriebsmittels in dem Reaktor erzielt wird.

Die Aufgabe wird gelöst durch einen Reaktor gemäß Hauptanspruch sowie durch ein Verfahren gemäß Nebenanspruch. Vorteilhafte Ausführungsformen ergeben sich aus den jeweils darauf rückbezogenen Ansprüchen.

Der Reaktor weist einen Zuführungskanal für ein Betriebsmittel auf, dessen Querschnitt über seine Länge abnimmt. Er weist weiterhin einen in den Zuführungskanal führenden Zulauf eines Versorgungskanals auf. Der Zulauf und die Eintrittsseite des Reaktors für das Betriebsmittel schließen einen Winkel α von 20 bis 70 Grad ein.

Der abnehmende Querschnitt eines solchen Zuführungskanals gewährleistet, daß der Strömungsdruck des Betriebsmittels nach Eintritt in den Zuführungskanal über die gesamte, an den Zuführungskanal angrenzende, Eintrittsseite des Reaktors aufrecht erhalten bleibt. Dadurch wird der nachlassende Strömungsdruck, der auf Grund von in den Reaktor entweichenden Massenströmen auftritt, ausgeglichen. Das Betriebsmittel wird somit gleichmäßig über die gesamte Länge dieser Eintrittsseite des Reaktors verteilt. Die Schräge des Zulaufs zur Eintrittsseite des Reaktors bewirkt vorteilhaft, daß das Betriebsmittel auch innerhalb eines möglicherweise vorhandenen Elektrodenraumes, beispielsweise von Brennstoffzellen, gleichmäßig verteilt wird. Der Winkel der Schräge variiert, in Abhängigkeit vom Design des Reaktors, von 20 bis 70 Grad.

Der Winkel zwischen Zuführungskanal und Eintrittsseite, im weiteren als Winkel β bezeichnet, beträgt vorteilhaft zwischen 2 und 5 Grad.

In einer weiteren Ausgestaltung der Erfindung schließen der Zulauf und die Eintrittsseite des Reaktors einen Winkel α von 45 Grad ein.

Dadurch wird eine besonders gleichmäßige Verteilung des Betriebsmittels in den Reaktor erzielt.

In einer weiteren Ausgestaltung der Erfindung nimmt der Querschnitt des Zuführungskanals über seine Länge um 40-60 % ab.

Dies hat sich bezüglich der Aufrechterhaltung des Strömungsdruckes entlang der Eintrittsseite des Reaktors als besonders vorteilhaft herausgestellt.

5 Die Kombination aus einem schräg zur Eintrittsseite des Reaktors zulaufenden Versorgungskanal und abnehmenden Querschnitt des Zuführungskanals gewährleistet, daß entlang des Zuführungskanals bzw. entlang der Eintrittsseite des Reaktors das Betriebsmittel gleichmäßig verteilt wird. Weiterhin durchströmt das Betriebsmittel 10 nach Eintritt in einen Elektrodenraum diesen gleichmäßig. Das abgereicherte Betriebsmittel verläßt als Reaktionsprodukt an einer als Austrittsseite bezeichneten Seite den Reaktor.

15 An der Austrittsseite des Reaktors ist, in Analogie des Zuführungskanals an der Eintrittsseite, ein entsprechender Abführungskanal für ein Reaktionsprodukt vorgesehen. Der Querschnitt des Abführungskanals nimmt dann entsprechend über seine Länge zu.

20 Besonders vorteilhaft nimmt der Querschnitt des Abführungskanals über seine Länge um 40-60 % zu.

Dadurch wird gewährleistet, daß der Strömungsdruck auch an der Austrittsseite des Reaktors konstant ist.

25 Über den Abführungskanal wird das Reaktionsprodukt dem Ablauf eines Entsorgungskanals zugeführt, wobei der Ablauf und die Austrittsseite des Reaktors einen Winkel α' von 20 bis 70 und insbesondere 45 Grad einschließen.

5 Der Querschnitt des Abführungskanals für das Reaktionsprodukt nimmt dann über den Strömungsweg des Reaktionsproduktes bis hin zu einem Ablauf eines Entsorgungskanals zu. Durch die Schräge des Ablaufs wird das Reaktionsprodukt besonders effizient aus dem Reaktor herausgeführt. Der Winkel β' zwischen Abführungskanal und Austrittsseite des Reaktors beträgt vorteilhaft zwischen 2 und 5 Grad.

10 Das Verfahren zur gleichmäßigen Verteilung eines Betriebsmittels in einem Reaktor sieht die folgenden Schritte vor:

- ein Betriebsmittel wird in einem Winkel α von 20-70 Grad an die Eintrittsseite eines Reaktors herangeführt,
- 15 - das Betriebsmittel wird anschließend in einen sich bezüglich seines Querschnitts abnehmenden Zuführungskanal eingeleitet,
- das Betriebsmittel verteilt sich nach Eintritt gleichmäßig in dem Reaktor,
- 20 - das Betriebsmittel durchströmt den Reaktor an allen Punkten mit nahezu gleicher Geschwindigkeit.

Speziell in dem Fall, daß das Betriebsmittel in einem Winkel α von 45 Grad an die Eintrittsseite herangeführt wird, durchströmt das Betriebsmittel nahezu gleichmäßig
25 den Reaktor. Somit liegt während des Betriebes jeweils eine annähernd gleiche Menge (Volumen / Masse) des Betriebsmittels an allen Punkten innerhalb des Reaktors bzw. im Elektrodenraum des Reaktors vor. Es tritt eine Erhöhung des Wirkungsgrades auf Grund einer gleichmäßi-
30 gen Verteilung auf.

Gemäß Anspruch 8 ist unter einem Reaktor insbesondere auch eine Brennstoffzelle zu verstehen.

5 Die Brennstoffzelle weist einen Zuführungskanal für ein Betriebsmittel auf, dessen Querschnitt über seine Länge abnimmt. Sie weist weiterhin einen in den Zuführungskanal führenden Zulauf eines Versorgungskanals auf. Der Zulauf und die Eintrittsseite der Brennstoffzelle für das Betriebsmittel schließen einen Winkel α von 20 bis 70 Grad ein.

10 Der abnehmende Querschnitt eines solchen Zuführungskanals gewährleistet, daß der Strömungsdruck des Betriebsmittels nach Eintritt in den Zuführungskanal über die gesamte, an den Zuführungskanal angrenzende, Eintrittsseite der Brennstoffzelle aufrecht erhalten
15 bleibt. Dadurch wird der nachlassende Strömungsdruck, der auf Grund von in die Brennstoffzelle entweichenden Massenströmen auftritt, ausgeglichen. Das Betriebsmittel wird somit gleichmäßig über die gesamte Länge dieser Eintrittsseite der Brennstoffzelle verteilt. Die
20 Schräge des Zulaufs zur Eintrittsseite der Brennstoffzelle bewirkt vorteilhaft, daß das Betriebsmittel auch innerhalb des Elektrodenraumes gleichmäßig verteilt wird. Der Winkel der Schräge variiert, in Abhängigkeit vom Design der Brennstoffzelle, von 20 bis 70 Grad.

25

Der Winkel zwischen Zuführungskanal und Eintrittsseite, im weiteren als Winkel β bezeichnet, beträgt vorteilhaft zwischen 2 und 5 Grad.

In einer weiteren Ausgestaltung der Erfindung schließen der Zulauf und die Eintrittsseite der Brennstoffzelle einen Winkel α von 45 Grad ein.

5 Dadurch wird eine besonders gleichmäßige Verteilung des Betriebsmittels in der Brennstoffzelle erzielt.

In einer weiteren Ausgestaltung der Erfindung nimmt der Querschnitt des Zuführungskanals über seine Länge um 40-60 % ab.

10 Dies hat sich bezüglich der Aufrechterhaltung des Strömungsdruckes entlang der Eintrittsseite der Brennstoffzelle als besonders vorteilhaft herausgestellt.

15 Die Kombination aus einem schräg zur Eintrittsseite der Brennstoffzelle zulaufenden Versorgungskanal und abnehmenden Querschnitt des Zuführungskanals gewährleistet, daß entlang des Zuführungskanals bzw. entlang der Eintrittsseite der Brennstoffzelle das Betriebsmittel gleichmäßig verteilt wird. Weiterhin durchströmt das Betriebsmittel nach Eintritt in den Elektrodenraum diesen gleichmäßig. Das abgereicherte Betriebsmittel verläßt als Reaktionsprodukt an einer als Austrittsseite bezeichneten Seite die Brennstoffzelle.

20

25 An der Austrittsseite der Brennstoffzelle ist, in Analogie des Zuführungskanals an der Eintrittsseite, ein entsprechender Abführungskanal für ein Reaktionsprodukt vorgesehen. Der Querschnitt des Abführungskanals nimmt dann entsprechend über seine Länge zu.

Besonders vorteilhaft nimmt der Querschnitt des Abführungschanals über seine Länge um 40-60 % zu.

Dadurch wird gewährleistet, daß der Strömungsdruck auch an der Austrittsseite der Brennstoffzelle konstant ist.

5

Über den Abführungschanal wird das Reaktionsprodukt dem Ablauf eines Entsorgungskanals zugeführt, wobei der Ablauf und die Austrittsseite der Brennstoffzelle einen Winkel α' von 20 bis 70 und insbesondere 45 Grad einschließen.

10

Der Querschnitt des Abführungschanals für das Reaktionsprodukt nimmt dann über den Strömungsweg des Reaktionsproduktes bis hin zu einem Ablauf eines Entsorgungskanals zu. Durch die Schräge des Ablaufs wird das Reaktionsprodukt besonders effizient aus der Brennstoffzelle herausgeführt. Der Winkel β' zwischen Abführungschanal und Austrittsseite der Brennstoffzelle beträgt vorteilhaft zwischen 2 und 5 Grad.

15

20 Das Verfahren zur gleichmäßigen Verteilung eines Betriebsmittels in einer Brennstoffzelle sieht die folgenden Schritte vor:

- ein Betriebsmittel wird in einem Winkel α von 20-70 Grad an die Eintrittsseite einer Brennstoffzelle herangeführt,

25

- das Betriebsmittel wird anschließend in einen sich bezüglich seines Querschnitts abnehmenden Zuführungschanal eingeleitet,

- das Betriebsmittel verteilt sich nach Eintritt gleichmäßig in der Brennstoffzelle,
- das Betriebsmittel durchströmt die Brennstoffzelle an allen Punkten mit nahezu gleicher Geschwindigkeit.

5

Speziell in dem Fall, daß das Betriebsmittel in einem Winkel α von 45 Grad an die Eintrittsseite herangeführt wird, durchströmt das Betriebsmittel nahezu gleichmäßig die Brennstoffzelle. Somit liegt während des Betriebes jeweils eine annähernd gleiche Menge (Volumen / Masse) des Betriebsmittels an allen Punkten innerhalb des Elektrodenraumes vor. Es tritt eine Erhöhung des Wirkungsgrades auf Grund einer gleichmäßigen Verteilung auf.

10

15

Im Folgenden wird die Erfindung an Hand einiger Ausführungsbeispiele näher erläutert.

20

Fig. 1 zeigt die Eintrittsseite eines erfindungsgemäßen Reaktors, insbesondere einer Brennstoffzelle. Der Winkel α zwischen Zulauf 2 und der Eintrittsseite des Reaktors beträgt 45 Grad. Die Eintrittsseite verläuft entlang der Achse a-a'. Die Eintrittsseite befindet sich zwischen den beiden senkrechten Linien 6. Die Linien 6 deuten den weiteren Verlauf des Reaktors in vertikaler Richtung an.

25

Elektroden oder auch Gasverteilerstrukturen sind nicht dargestellt. Der Zulauf 2 führt in den bezüglich des Querschnitts kleineren Zuführungskanal 3. Der Querschnitt des Zuführungskanals 3 nimmt über seine Länge

30

von 8 mm² auf 3 mm² ab. Der Querschnitt des Zulaufs 2 beträgt 12 mm². Zuführungskanal 3 und die Eintrittsseite des Reaktors bzw. der Brennstoffzelle schließen einen Winkel β von 2 Grad ein. Die Länge der Eintrittsseite beträgt 200 mm.

Fig. 2 zeigt einen erfindungsgemäßen Reaktor 1, insbesondere eine Brennstoffzelle. Es bedeuten:

- α : Winkel zwischen Zulauf 2 und Eintrittsseite entlang der Achse a-a'
- α' : Winkel zwischen Ablauf 5 und Austrittsseite entlang der Achse A-A'
- β : Winkel zwischen Zuführungskanal 3 und Eintrittsseite entlang der Achse a-a'
- β' : Winkel zwischen Abführungskanal 4 und Austrittsseite entlang der Achse A-A'

Die Strömungsrichtung des Betriebsmittels ist durch die dick markierten Pfeile gekennzeichnet. Der Zulauf 2 wird aus einem Versorgungskanal mit Betriebsmittel versorgt, der Ablauf 5 führt das Reaktionsprodukt in den Entsorgungskanal. Versorgungskanal und Entsorgungskanal sind nicht dargestellt. Das Betriebsmittel gelangt über den Zulauf 2 in den Zuführungskanal 3. Der Winkel α zwischen Zulauf und der Eintrittsseite entlang der Achse a-a' beträgt 40 Grad, der Winkel β zwischen Zuführungskanal 3 und der Eintrittsseite beträgt 2 Grad. Das Betriebsmittel gelangt in den Reaktor bzw. in die Brennstoffzelle und durchströmt diesen bzw. diese. Das

Betriebsmittel verläßt den Reaktor bzw. die Brennstoffzelle nach der elektrochemischen Reaktion über den Abführungskanal 4 und den Ablauf 5. Der Winkel α' zwischen Ablauf 5 und der Austrittsseite entlang der Achse A-A' beträgt 40 Grad. Der Winkel β' zwischen Abführungskanal 4 und der Austrittsseite entlang der Achse A-A' beträgt 2 Grad.

Die in den Figuren 1 und 2 beschriebenen Geometrien für die Eintrittsseite und die Austrittsseite sind, wie erwähnt, insbesondere auch für Brennstoffzellen als Reaktoren geeignet. Um mehrere Betriebsmittel auf diese Weise gleichmäßig den Elektroden der Brennstoffzelle zuzuführen, zu verteilen und wieder abzuführen, kann die Brennstoffzelle derart gestaltet sein, daß das Oxidationsmittel und das Reduktionsmittel beispielsweise im Kreuzstrom- oder auch im Gegenstromverfahren an die Elektroden geführt werden.

Fig. 3 zeigt die Strömungsgeschwindigkeit eines Betriebsmittels in Abhängigkeit von der Position innerhalb einer 200 mm breiten und 300 mm langen Brennstoffzelle. Die Strömungsgeschwindigkeit innerhalb der Brennstoffzelle wurde in der Mitte der Brennstoffzelle bei einer Länge von 150 mm entlang der Achse X-X' entsprechend der Fig. 2 gemessen. Im oberen Teil der Fig. 3 ist die Strömungsgeschwindigkeit eines Betriebsmittels in einer konventionellen Brennstoffzelle gemessen. Der Winkel α zwischen Zulauf und der Eintrittsseite entlang einer Achse a-a' entsprechend der Fig. 2 beträgt 90 Grad. Der Winkel α' zwischen Ablauf und Aus-

trittsseite entlang einer Achse A-A' entsprechend der Fig. 2 beträgt ebenfalls 90 Grad. Innerhalb der Brennstoffzelle tritt eine ungleichmäßige Strömungsgeschwindigkeit und damit eine ungleichmäßige Verteilung des Betriebsmittels entlang der Achse X-X' auf.

In einer Ausgestaltung der anspruchsgemäßen Brennstoffzelle mit Winkeln von jeweils 45 Grad zwischen Zulauf und Eintrittsseite sowie Ablauf und Austrittsseite tritt, wie im unteren Teil der Fig. 3 dargestellt, eine gleichmäßige Strömungsgeschwindigkeit und damit eine Gleichverteilung des Betriebsmittels innerhalb der Brennstoffzelle entlang der Achse X-X' auf. Die Strömungsgeschwindigkeit und damit die Verteilung des Betriebsmittels ist innerhalb der Brennstoffzelle an allen Punkten der Achse X-X' nahezu identisch. Der Variationskoeffizient hierzu beträgt nur ca. 5 %.

Die in den Figuren dargestellten Geometrien und Ergebnisse sind auf weitere Reaktortypen übertragbar, bei denen eine gleichmäßige Verteilung von Betriebsmitteln im Reaktor erwünscht ist. Weitere bevorzugte Anwendungen sind z.B. die in Brenngaserzeugungssystemen für den mobilen Einsatz der Brennstoffzelle enthaltenen Wärmetauscher und Mikroreaktoren. Durch die beschriebenen Geometrien werden die Strömungsverhältnisse von Betriebsmitteln günstig beeinflusst, so daß von einem Strömungsquerschnitt einer technisch gängigen Größenordnung auch auf eine Vielzahl von Strömungsquerschnitten im Submillimeterbereich (Mikroreaktor) übergegangen werden kann. Es werden dann alle Bereiche innerhalb des

Wärmetauschers bzw. Mikroreaktors mit Reaktionsgemisch gleichmäßig beaufschlagt und durchströmt. Vorhandener Katalysator wird vollständig genutzt. Dadurch wird Katalysator eingespart. Eine Reduktion an Katalysator ist für den Einsatz in einem Massenprodukt wie z.B. dem Automobil wünschenswert, da bereits aus einer kleinen pro Aggregat eingesparten Menge an Katalysator aufgrund der hohen Stückzahlen eine große Gesamtersparnis an Kosten resultiert.

Weiterhin bildet sich senkrecht zur Strömungsrichtung des Betriebsmittels ein gleichmäßiges Temperaturprofil aus, da die durchgesetzten Massenströme in allen Bereichen des Wärmetauschers bzw. Mikroreaktors annähernd konstant sind. Durch das gleichmäßige Temperaturprofil senkrecht zur Strömungsrichtung wird vermieden, daß Wärme in relevanten Größenordnungen in dieser Richtung übertragen wird.

In Wärmetauschern bzw. Mikroreaktoren können zur Verteilung der Betriebsmittel bipolare Platten eingesetzt werden. Unter der Annahme, daß eine gleichmäßige Beschichtung aller Kanäle einer bipolaren Platte mit Katalysator bei heterogen- katalysierten Reaktionen vorliegt, werden in allen Kanälen ähnliche Umsätze erzielt werden. Wenn ein Reaktionsgemisch gekühlt bzw. beheizt wird, werden ähnliche Reaktionsgeschwindigkeiten in einer Ebene senkrecht zur Strömungsrichtung und damit eine homogene Produktgasqualität erzielt.

Aus der verbesserten Katalysatorausnutzung resultiert auch ein geringeres Bauvolumen. Dies bewirkt neben einer Volumenreduktion eine Verringerung der thermischen

Masse der Reaktoren. Auf Grund kleinerer Baugrößen nehmen die Kosten des Wärmetauschers bzw. Mikroreaktors ab. Eine Abnahme der Herstellungskosten eines on-board Brenngaserzeugungssystems ist wegen des hohen Anteils
5 an den Gesamtkosten eines Fahrzeugs mit Brennstoffzellenantrieb besonders vorteilhaft.

P a t e n t a n s p r ü c h e

-
1. Reaktor (1) mit einem Zuführungskanal (3) für ein Betriebsmittel, dessen Querschnitt über seine Länge abnimmt, und einem in den Zuführungskanal (3) führenden Zulauf (2) eines Versorgungskanals, 5 dadurch gekennzeichnet, daß der Zulauf (2) und eine Eintrittsseite des Reaktors für das Betriebsmittel einen Winkel α von 20 bis 70 Grad einschließen.
- 10 2. Reaktor nach vorhergehendem Anspruch, dadurch gekennzeichnet, daß der Zulauf (2) und die Eintrittsseite des Reaktors einen Winkel α von 45 Grad einschließen.
- 15 3. Reaktor nach einem der vorhergehenden Ansprüche, dadurch gekennzeichnet, daß der Querschnitt des Zuführungskanals (3) über seine Länge um 40-60 % abnimmt.
- 20 4. Reaktor nach einem der vorhergehenden Ansprüche, dadurch gekennzeichnet, daß der Querschnitt eines Abführungskanals (4) für ein Reaktionsprodukt über seine Länge zunimmt.
- 25 5. Reaktor nach vorhergehendem Anspruch, dadurch gekennzeichnet, daß der Querschnitt des Abführungskanals (4) über seine Länge um 40-60 % zunimmt.

- 5 6. Reaktor nach einem der vorhergehenden Ansprüche,
dadurch gekennzeichnet,
daß ein Ablauf (5) eines Entsorgungskanals und die
Austrittsseite des Reaktors einen Winkel α' von 20
bis 70 Grad einschließen.
- 10 7. Reaktor nach vorhergehendem Anspruch,
dadurch gekennzeichnet,
daß der Ablauf (5) des Entsorgungskanals und die
Austrittsseite des Reaktors einen Winkel α' von 45
Grad einschließen.
8. Brennstoffzelle als Reaktor nach einem der Ansprüche
1 bis 7.
9. Wärmetauscher als Reaktor nach einem der Ansprüche
1 bis 7.
- 15 10. Verfahren zur Verteilung eines Betriebsmittels in
einem Reaktor mit den Schritten,
- 20 - ein Betriebsmittel wird in einem Winkel von 20-
70 Grad an die Eintrittsseite eines Reaktors
herangeführt,
- 20 - das Betriebsmittel wird anschließend in einen
sich bezüglich seines Querschnitts abnehmenden
Zuführungskanal (3) eingeleitet,
- 25 - das Betriebsmittel verteilt sich gleichmäßig
über die Eintrittsseite des Reaktors,
- 25 - das Betriebsmittel durchströmt den Reaktor an
allen Punkten mit nahezu gleicher Geschwindigkeit.

11. Verfahren nach vorhergehendem Anspruch,
dadurch gekennzeichnet,
daß das Betriebsmittel in einem Winkel von 45 Grad
an die Eintrittsseite des Reaktors heran geführt
wird.

5

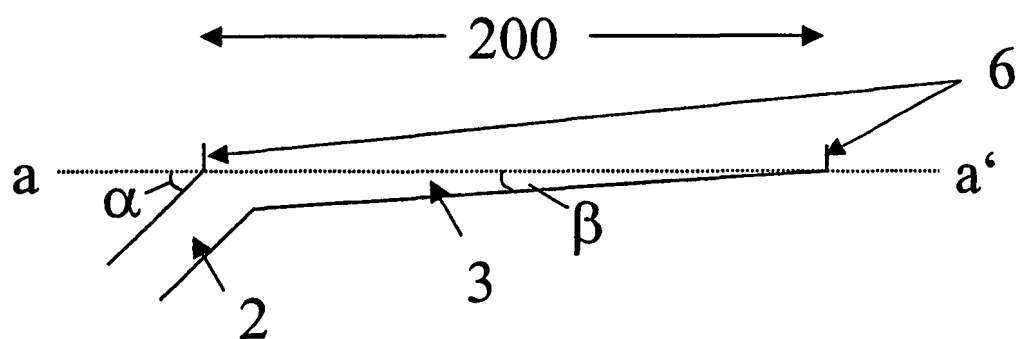


Fig. 1

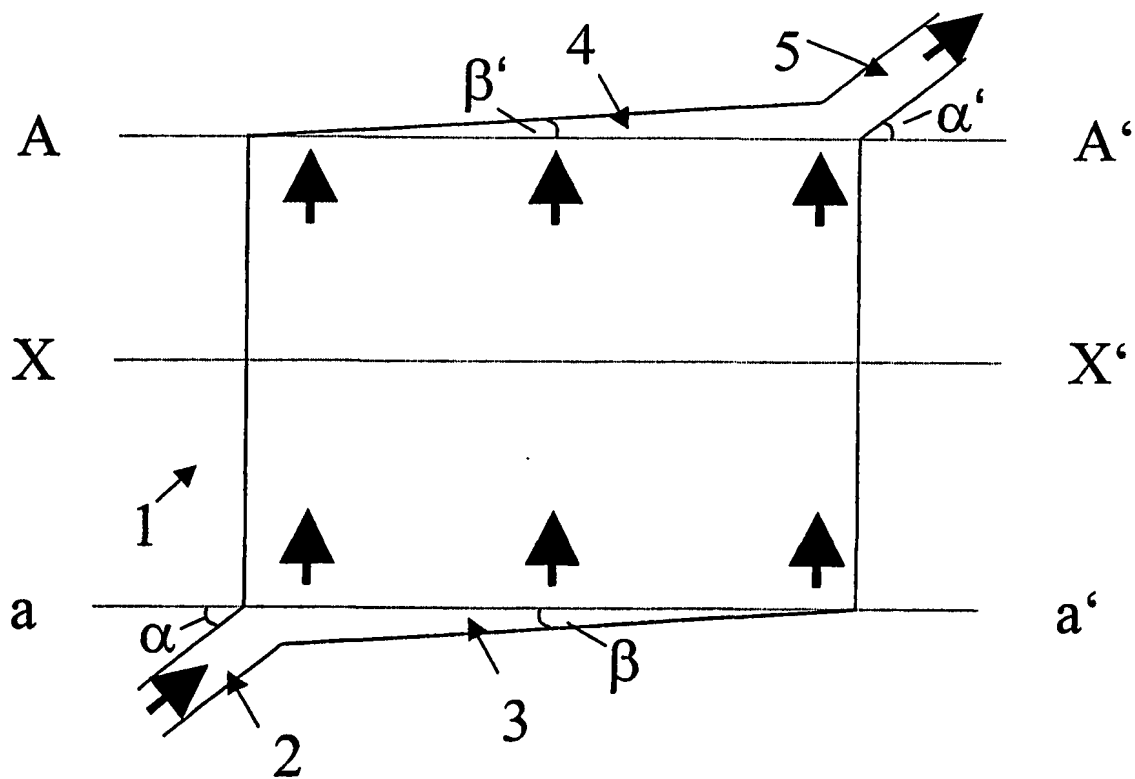


Fig. 2

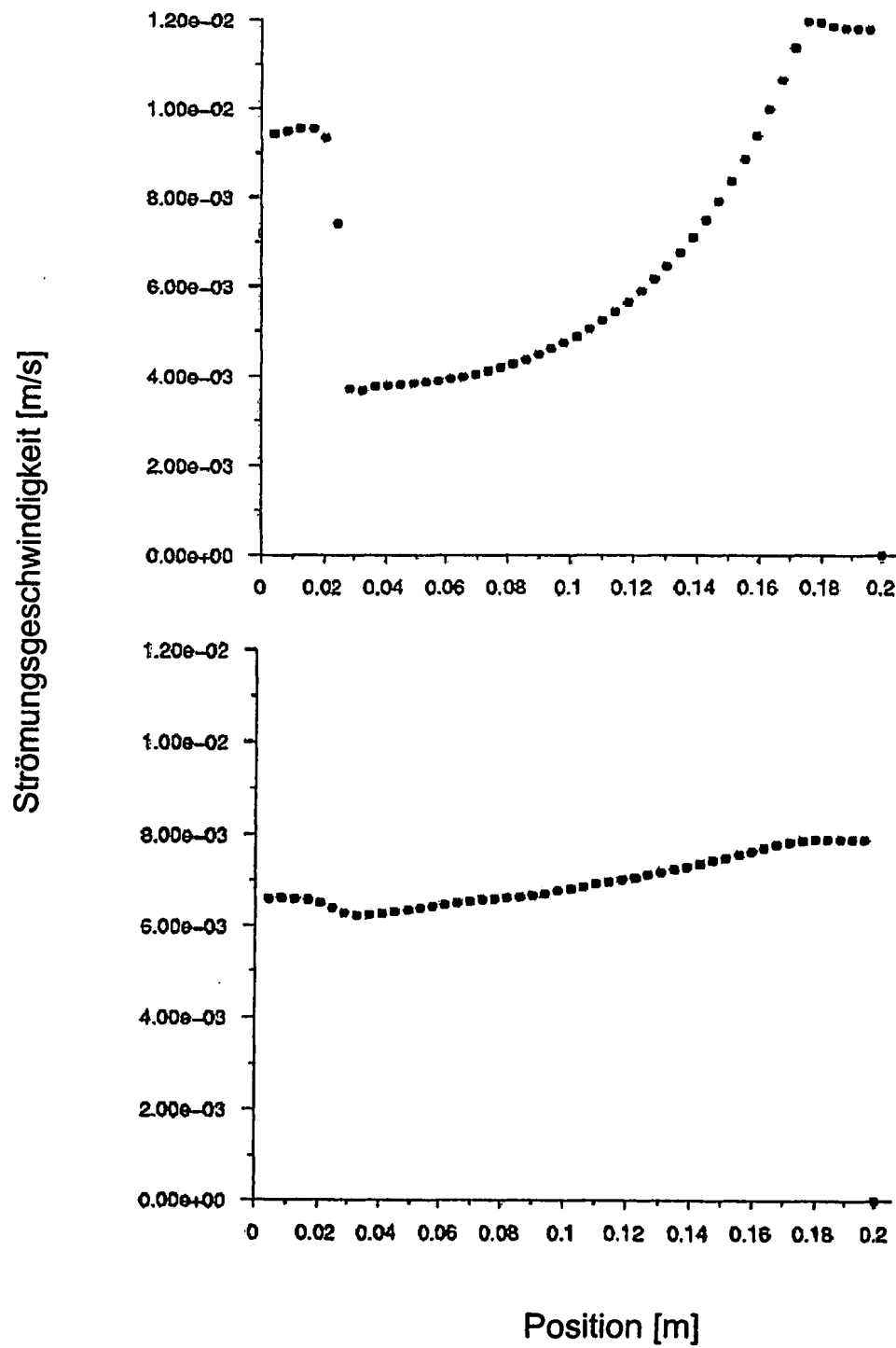


Fig. 3

INTERN. ONAL SEARCH REPORT

International Application No

PCT/DE 02/00617

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

IPC 7 B01J8/00 F28F27/02 H01M8/24 C01B3/00 B01J19/00

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)

IPC 7 B01J F28F H01M C01B

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practical, search terms used)

EPO-Internal, WPI Data, PAJ

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category *	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X	EP 1 038 575 A (XCELLSIS GMBH) 27 September 2000 (2000-09-27) column 4, line 32 - column 6, line 35 claims 1,4,5,8; figures 2,3 ---	1-11
X	EP 0 998 973 A (BALCKE DUERR ENERGIETECH GMBH) 10 May 2000 (2000-05-10) column 4, line 14 - line 29 claims 1,9; figures 2,4 ---	1-7,9-11
X	US 2 934 322 A (HAZARD FREDERICK E) 26 April 1960 (1960-04-26) column 2, line 30 - line 54 figure 2 --- -/--	1-7,9-11

☒ Further documents are listed in the continuation of box C.☒ Patent family members are listed in annex.

* Special categories of cited documents:

- *A* document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance
- *E* earlier document but published on or after the international filing date
- *L* document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)
- *O* document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means
- *P* document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed

- *T* later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention
- *X* document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone
- *Y* document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art.
- *&* document member of the same patent family

Date of the actual completion of the international search

16 July 2002

Date of mailing of the international search report

23/07/2002

Name and mailing address of the ISA

European Patent Office, P.B. 5818 Patentlaan 2
NL - 2280 HV Rijswijk
Tel. (+31-70) 340-2040, Tx. 31 651 epo nl,
Fax: (+31-70) 340-3016

Authorized officer

Vlassis, M

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International Application No

PCT/DE 02/00617

C.(Continuation) DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category *	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X	US 6 099 983 A (NAKAGAKI TAKAO, OGAWA TAKASHI, HORI MICHIO ET AL) 8 August 2000 (2000-08-08) column 11, line 47 -column 12, line 20 figures 14,15 -----	1-3,8, 10,11

Form PCT/ISA/210 (continuation of second sheet) (July 1992)

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

Information on patent family members

International Application No

PCT/DE 02/00617

Patent document cited in search report		Publication date		Patent family member(s)	Publication date
EP 1038575	A	27-09-2000	DE	19912318 A1	28-09-2000
			EP	1038575 A2	27-09-2000
EP 0998973	A	10-05-2000	EP	0998973 A1	10-05-2000
US 2934322	A	26-04-1960	NONE		
US 6099983	A	08-08-2000	JP	10177864 A	30-06-1998
			DE	19746074 A1	14-05-1998

Form PCT/ISA/210 (patent family annex) (July 1992)

A. KLASSIFIZIERUNG DES ANMELDUNGSGEGENSTANDES

IPK 7 B01J8/00 F28F27/02 H01M8/24 C01B3/00 B01J19/00

Nach der internationalen Patentklassifikation (IPK) oder nach der nationalen Klassifikation und der IPK

B. RECHERCHIERTE GEBIETE

Recherchiertes Mindestprüfstoff (Klassifikationssystem und Klassifikationssymbole)

IPK 7 B01J F28F H01M C01B

Recherchierte aber nicht zum Mindestprüfstoff gehörende Veröffentlichungen, soweit diese unter die recherchierten Gebiete fallen

Während der internationalen Recherche konsultierte elektronische Datenbank (Name der Datenbank und evtl. verwendete Suchbegriffe)

EPO-Internal, WPI Data, PAJ

C. ALS WESENTLICH ANGESEHENE UNTERLAGEN

Kategorie*	Bezeichnung der Veröffentlichung, soweit erforderlich unter Angabe der in Betracht kommenden Teile	Betr. Anspruch Nr.
X	EP 1 038 575 A (XCELLSIS GMBH) 27. September 2000 (2000-09-27) Spalte 4, Zeile 32 - Spalte 6, Zeile 35 Ansprüche 1,4,5,8; Abbildungen 2,3 ---	1-11
X	EP 0 998 973 A (BALCKE DUERR ENERGIETECH GMBH) 10. Mai 2000 (2000-05-10) Spalte 4, Zeile 14 - Zeile 29 Ansprüche 1,9; Abbildungen 2,4 ---	1-7,9-11
X	US 2 934 322 A (HAZARD FREDERICK E) 26. April 1960 (1960-04-26) Spalte 2, Zeile 30 - Zeile 54 Abbildung 2 --- -/--	1-7,9-11

☒ Weitere Veröffentlichungen sind der Fortsetzung von Feld C zu entnehmen☒ Siehe Anhang Patentfamilie

* Besondere Kategorien von angegebenen Veröffentlichungen :

A Veröffentlichung, die den allgemeinen Stand der Technik definiert, aber nicht als besonders bedeutsam anzusehen ist

E Älteres Dokument, das jedoch erst am oder nach dem internationalen Anmeldedatum veröffentlicht worden ist

L Veröffentlichung, die geeignet ist, einen Prioritätsanspruch zweifelhaft erscheinen zu lassen, oder durch die das Veröffentlichungsdatum einer anderen im Recherchenbericht genannten Veröffentlichung belegt werden soll oder die aus einem anderen besonderen Grund angegeben ist (wie ausgeführt)

O Veröffentlichung, die sich auf eine mündliche Offenbarung, eine Benutzung, eine Ausstellung oder andere Maßnahmen bezieht

P Veröffentlichung, die vor dem internationalen Anmeldedatum, aber nach dem beanspruchten Prioritätsdatum veröffentlicht worden ist

T Spätere Veröffentlichung, die nach dem internationalen Anmeldedatum oder dem Prioritätsdatum veröffentlicht worden ist und mit der Anmeldung nicht kollidiert, sondern nur zum Verständnis des der Erfindung zugrundeliegenden Prinzips oder der ihr zugrundeliegenden Theorie angegeben ist

X Veröffentlichung von besonderer Bedeutung; die beanspruchte Erfindung kann allein aufgrund dieser Veröffentlichung nicht als neu oder auf erfinderischer Tätigkeit beruhend betrachtet werden

Y Veröffentlichung von besonderer Bedeutung; die beanspruchte Erfindung kann nicht als auf erfinderischer Tätigkeit beruhend betrachtet werden, wenn die Veröffentlichung mit einer oder mehreren anderen Veröffentlichungen dieser Kategorie in Verbindung gebracht wird und diese Verbindung für einen Fachmann naheliegend ist

Z Veröffentlichung, die Mitglied derselben Patentfamilie ist

Datum des Abschlusses der internationalen Recherche

16. Juli 2002

Absendedatum des internationalen Recherchenberichts

23/07/2002

Name und Postanschrift der Internationalen Recherchenbehörde

Europäisches Patentamt, P.B. 5818 Patentlaan 2
NL - 2280 HV Rijswijk
Tel. (+31-70) 340-2040, Tx. 31 651 epo nl,
Fax: (+31-70) 340-3016

Bevollmächtigter Bediensteter

Vlassis, M

C.(Fortsetzung) ALS WESENTLICH ANGESEHENE UNTERLAGEN

Kategorie*	Bezeichnung der Veröffentlichung, soweit erforderlich unter Angabe der in Betracht kommenden Teile	Betr. Anspruch Nr.
X	US 6 099 983 A (NAKAGAKI TAKAO, OGAWA TAKASHI, HORI MICHIO ET AL) 8. August 2000 (2000-08-08) Spalte 11, Zeile 47 -Spalte 12, Zeile 20 Abbildungen 14,15 -----	1-3,8, 10,11

INTERNATIONALER RESEARCHBERICHT

Angaben zu Veröffentlichungen, die zur selben Patentfamilie gehören

Internationales Aktenzeichen

PCT/DE 02/00617

Im Recherchenbericht angeführtes Patentdokument		Datum der Veröffentlichung	Mitglied(er) der Patentfamilie	Datum der Veröffentlichung
EP 1038575	A	27-09-2000	DE 19912318 A1 EP 1038575 A2	28-09-2000 27-09-2000
EP 0998973	A	10-05-2000	EP 0998973 A1	10-05-2000
US 2934322	A	26-04-1960	KEINE	
US 6099983	A	08-08-2000	JP 10177864 A DE 19746074 A1	30-06-1998 14-05-1998